

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 28 NOV 2005


WIPO

PCT

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054685		<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/006912	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 25.06.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 11.07.2003	
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/78, C07C209/86, C07C211/50			
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT			
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p>			
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>			
Datum der Einreichung des Antrags 15.02.2005		Datum der Fertigstellung dieses Berichts 24.11.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt - Gitschiner Str. 103 D-10958 Berlin Tel. +49 30 25901 - 0 Fax: +49 30 25901 - 840		Bevollmächtigter Bediensteter Rufet, J Tel. +49 30 25901-332	



**Feld Nr. I Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
  - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
  - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile\*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

**Beschreibung, Seiten**

1-10 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-13 eingegangen am 05.02.2005 mit Schreiben vom 04.02.2005

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

\* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

---

**Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

---

1. Feststellung
- |                                |                     |
|--------------------------------|---------------------|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-13  |
|                                | Nein: Ansprüche     |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-13  |
|                                | Nein: Ansprüche     |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-13 |
|                                | Nein: Ansprüche:    |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

**siehe Beiblatt**

---

**Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

---

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V.**

1. Im vorliegenden Bescheid wird auf folgende Dokumente verwiesen:

D1: DE-A-19613554

D2: EUGEN MÜLLER: "METHODEN DER ORGANISCHEN CHEMIE, Band I/1"  
1958, GEORG THIEME VERLAG, S. 557-558

D3: WO-A-99/40059 entspricht US-A-6433219, in der Anmeldung erwähnt

D4: EP-A-0109931

D5: EP 0 329075

D6: WO-A-94/23099

D7: EP-A-462697

D8: WO-A-01/58847 in der Anmeldung erwähnt

**2. Neuheit**

Die vorliegende Anmeldung erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 1 gegenüber D1-D8 im Sinne von Artikel 33(2) PCT als neu angesehen wird.

Dokument D1 offenbart ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung von Diaminodiarylmethanen durch:

- Schritt (a): Umsetzung von Anilin mit Formaldehyd in Gegenwart von Salzsäure als Katalysator (siehe S. 5, Z. 34-51; Anspruch 1)),
- Schritt (b): Entfernung des Katalysators durch Adsorption an einem festen Adsorptionsmittel (siehe S. 6, Z. 8, 13; S. 7, Z. 2-13) und
- Schritt (c): Aufarbeitung und Reinigen des Umsetzungsprodukts (siehe S. 7, Z. 14,15).

Gemäß Anspruch 1 erfolgt die Regenerierung des Adsorptionsmittels mit dem Amin, das als Einsatzprodukt des Verfahrens verwendet wird. Dieses Verfahrensmerkmal ist in D1 sowie D2-D8 nicht zu entnehmen, daher ist der Gegenstand der Anmeldung gemäß Ansprüche 1-13 als neu anzusehen.

Die Dokumente D2, D5-D7 offenbaren im allgemeinen die Verwendung eines basisches Ionenaustauschers um Überschußsäure aus Reaktionsmischungen zu entfernen. D3

beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Diaminodiarylmethanen ebenfalls durch Umsetzung von Anilin mit Formaldehyd in Gegenwart von Salzsäure als Katalysator, wobei die Entfernung der Säure nicht unter Verwendung eines basisches Ionenaustauschers erfolgt sondern durch die Abtrennung der Salze nach der Neutralisierung mit Natronlauge. D4 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von Diaminodiarylmethanen, wobei die Verwendung eines basisches Ionenaustauschers, um Überschußsäure aus Reaktionsmischungen zu entfernen, nicht offenbart ist. D8 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von MDA, bei dem ein getrocknetes Kondensat von Anilin und der Darreichungsform des Formaldehyds in Gegenwart fester anorganischer, saurer Katalysatoren umgesetzt wird.

### **3. Erfinderische Tätigkeit**

Nach der Beschreibung, siehe insbesondere, Seite 2, Absatz 2 sowie Seite 3, Z. 5-10, ist die Aufgabe darin zu sehen, ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von Diaminodiarylmethanen unter Verwendung von erhöhtem Einsatz von Säure welches aus D3 (siehe Beispiel 3) und D4 (siehe S. 3, Z. 5-22) bereits bekannt ist, jedoch ohne die damit verbundenen Nachteile wie z.B. erhöhte Salzfracht im Abwasser, zu entwickeln.

D1 und D8 sind für die Beurteilung der erfinderischen Tätigkeit gleich relevant und als nächster Stand der Technik zu betrachten. Ausgehend von der Lehre von D1 und D8, sowie D2-D7 konnte der Fachmann nicht entnehmen, daß es möglich ist, die gesamte für die Kondensation als Katalysator eingesetzte Säure mit einem Adsorptionsmittel aus dem Reaktionsgemisch zu entfernen und das Adsorptionsmittel mit dem Amin, das als Ausgangsprodukt für die Kondensation eingesetzt wurde, zu regenerieren. Die Gemische aus Säure und Amin können wieder dem Ausgangsgemisch zugeführt werden. Dadurch ist es möglich, die eingesetzte Säure im wesentlichen im Kreislauf zu fahren.

Der Anmeldungsgegenstand wird daher als erfinderisch angesehen.

### **Zu Punkt VIII.**

Der im Anspruch 2 benutzte Ausdruck "höheren Oligomeren" ist vage und unbestimmt und macht den Gegenstand des Anspruchs unklar. Darüber hinaus kann ein unklarer Ausdruck

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
BERICHT ZUR PATENTIERBARKEIT  
(BEIBLATT)**

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/006912

vom Anmelder nicht dazu benutzt werden, seine Erfindung vom Stande der Technik abzugrenzen.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Diaminodiarylmethanen, umfassend die Schritte

5 a) Umsetzung eines aromatischen Amins mit einem Methylengruppen liefernden Agens in Gegenwart von homogenen sauren Katalysatoren,

b) Entfernung des homogenen sauren Katalysators aus dem Umsetzungs-  
produkt,

10 c) Aufarbeitung und Reinigen des Umsetzungsprodukts.

dadurch gekennzeichnet, dass der homogene saure Katalysator durch  
Adsorption an einem festen Adsorptionsmittel aus dem Reaktionsgemisch ent-  
fernt wird und die Regenerierung des Adsorptionsmittels mit dem Amin erfolgt,  
das als Einsatzprodukt des Verfahrens verwendet wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Adsorptions-  
mittel ein auf Basis von höheren Oligomeren des Diphenylmethandiamins  
oder auf Basis eines funktionalisierten Trägermaterials hergestellter basischer  
Ionentauscher ist.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Basenstärke  
des Adsorptionsmittels +/- 1,0 pK<sub>B</sub>-Einheiten von der des aromatischen Amins  
in wässriger Lösung abweicht.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Basenstärke  
des Adsorptionsmittels +/- 0,5 pK<sub>B</sub>-Einheiten von der des aromatischen Amins  
in wässriger Lösung abweicht.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der saure Homogen-  
katalysator mit dem aromatischen Amin desorbiert und in die Umsetzung zurück-  
geführt wird.

6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in  
Schritt a) halbkontinuierlich durchgeführt wird.

7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das aromatische  
Amin ausgewählt ist aus der Gruppe, enthaltend Anilin und Alkylaniline mit 1  
bis 3 Kohlenstoffatomen in der Alkylkette.

8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das aromatische Amin ausgewählt ist aus der Gruppe, enthaltend Anilin und o-Toluidin.
- 5 9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Methylen-  
gruppen liefernden Agens Formaldehyd ist.
10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Formaldehyd  
als wässrige Formalinlösung oder Paraformaldehyd eingesetzt wird.
- 10 11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das molare Ver-  
hältnis von Anilin zu Formaldehyd größer 2 ist
12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das molare Ver-  
hältnis von Säure zu Anilin größer 0,05 ist.
- 15 13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als homogene saure  
Katalysatoren Mineralsäuren eingesetzt werden.